(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2002-8860 (P2002-8860A)

(43)公開日 平成14年1月11日(2002.1.11)

(51) Int.Cl.7	識別記号	F I	テーマコート [*] (参 考)
H05B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3K007
C09K 11/06	6 4 5	C 0 9 K 11/06	6 4 5
	6 6 0		660
	690		690
H05B 33/22		H 0 5 B 33/22	В
		審查請求 未請求	請求項の数8 OL (全 17 頁)
(21)出願番号	特願2000-135306(P2000-135306)	(71)出願人 0000059	68
		三菱化学	华株式会社
(22)出願日	平成12年5月9日(2000.5.9)	東京都干	「代田区丸の内二丁目5番2号
		(72)発明者 佐藤 信	上晴
(31)優先権主張番号	特願2000-116124(P2000-116124)	神奈川県	具横浜市青葉区鴨志田町1000番地
(32)優先日	平成12年4月18日(2000.4.18)	三菱化学	学株式会社横浜総合研究所内
(33)優先権主張国	日本 (JP)	(72)発明者 佐藤 秀	B樹
		神奈川県	具横浜市青葉区鴨志田町1000番地
		三菱化学	性株式会社横浜総合研究所内
		(74)代理人 1001039	97
		弁理士	長谷川 曉司
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57)【要約】

【課題】 燐光発光を利用した有機電界発光素子において、素子の発光効率を改善すると共に、駆動安定性を充分に確保する。を提供する。

【解決手段】 基板上に、陽極、発光層、および陰極が順次積層されてなる有機電界発光素子において、発光層が、主成分としてN-フェニルカルバゾール骨格を有する化合物を、また副成分として周期律表7ないし11族から選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体を含有しており、かつ、発光層と陰極との間に下記一般式(I)で表される化合物を含有する正孔阻止層を有することを特徴とする有機電界発光素子。

【化1】

(式中、Ar¹~Ar⁵は、置換基を有していてもよい芳香 族炭化水素環基または置換基を有していてもよい芳香族 Ar⁵

(式中、 $R^1 \sim R^6$ は水素原子または任意の置換基を表し、Mはアルミニウム、ガリウム、インジウムから選ばれる金属原子を表す。一般式(I)中、Xは以下に示す一般式(Ia)、(Ib)、(Ic) のいずれかで表される。)

複素環基を表し、Yはシリコンまたはゲルマニウムを表す。)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に、陽極、発光層、および陰極が 順次積層されてなる有機電界発光素子において、

発光層が、N-フェニルカルバゾール骨格を有する化合 物と、周期律表7ないし11族から選ばれる少なくとも 一つの金属を含む有機金属錯体を含有しており、かつ、 発光層と陰極との間に下記一般式(I)で表される化合 物を含有する正孔阻止層を有することを特徴とする有機 電界発光素子。

【化1】

* (式中、R1 ~ R6 は水素原子または任意の置換基を表 し、Mはアルミニウム、ガリウム、インジウムから選ば れる金属原子を表す。一般式(I)中、Xは以下に示す 一般式(Ia)、(Ib)、(Ic)のいずれかで表され る。)

【化2】

 $-0^{-0}_{C-Ar^2}$ (lb)

10

(式中、Ar1~Ar5は、置換基を有していてもよい芳香 族炭化水素環基または置換基を有していてもよい芳香族 複素環基を表し、Yはシリコンまたはゲルマニウムを表 す。)

【請求項2】 一般式(I)において、 $R^1 \sim R^6$ が、 水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、 アルケニル基、アリル基、シアノ基、アミノ基、アシル 基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、アルコ 30 キシ基、アルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸基、※

※置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環基または置 換基を有していてもよい芳香族複素環基である、請求項 1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 N-フェニルカルバゾール骨格を有する 化合物が、下記一般式(II)で表される化合物であるこ とを特徴とする請求項1または2記載の有機電界発光素 子。

【化3】

(式中、Zは2価の連結基を示す。カルバゾリル基およ びフェニレン基は、各々任意の置換基を有していてもよ V1.)

★ルバゾール骨格を有する化合物が、下記一般式(II') で表されることを特徴とする、請求項3記載の有機電界 40 発光素子。

【請求項4】 一般式(II)で表されるN-フェニルカ★

【化4】 (H)

☆ノ基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、 (式中、R7 ~R18は各々独立に、水素原子、ハロゲン 原子、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、シア☆50 カルボキシル基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、ア

ラルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸基、アリール オキシ基、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環 基または芳香族複素環基を表わし、 R^7 と R^8 、 R^9 と R^{10} , $R^{11} \ge R^{12}$, $R^{13} \ge R^{14}$, $R^{15} \ge R^{16}$, $R^{17} \ge R *$ *18はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成してもよ い。Zは2価の連結基を示し、直接結合、酸素原子、硫 黄原子、以下に示す連結基、

【化5】

置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環基または芳 香族複素環基のいずれかで表される。

【請求項5】 周期律表7ないし11族の金属が、ルテ ニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミ ウム、イリジウム、白金、および金から選ばれることを 特徴とする請求項1ないし4のいずれかに記載の有機電 界発光素子。

【請求項6】 発光層と陽極との間に、正孔輸送層を有 することを特徴とする請求項1ないし5のいずれか一項 に記載の有機電界発光素子。

【請求項7】 正孔阻止層と陰極との間に、電子輸送層 一項に記載の有機電界発光素子。

【請求項8】 正孔阻止層の膜厚が、 0.5~50nmの範囲 にあることを特徴とする請求項1ないし7のいずれかに 記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は有機電界発光素子に 関するものであり、詳しくは、有機化合物から成る発光 層に電界をかけて光を放出する薄膜型デバイスに関する ものである。

[0002]

【従来の技術】従来、薄膜型の電界発光(EL)素子と しては、無機材料のII-VI族化合物半導体であるZn S、CaS、SrS等に、発光中心であるMnや希土類 元素(Eu、Ce、Tb、Sm等)をドープしたものが 一般的であるが、上記の無機材料から作製したEL素子 は、

- 1)交流駆動が必要(50~1000 Hz)、
- 2)駆動電圧が高い(~200V)、
- 3)フルカラー化が困難(特に青色)、
- 4)周辺駆動回路のコストが高い、

という問題点を有している。

【0003】しかし、近年、上記問題点の改良のため、 有機薄膜を用いたEL素子の開発が行われるようになっ た。特に、発光効率を高めるため、電極からのキャリア 一注入の効率向上を目的として電極の種類の最適化を行 い、芳香族ジアミンから成る正孔輸送層と8-ヒドロキ シキノリンのアルミニウム錯体から成る発光層とを設け た有機電界発光素子の開発 (Appl. Phys. Lett., 51巻, 913頁, 1987年) により、従来のアントラセン等の単結※50

※晶を用いたEL素子と比較して発光効率の大幅な改善が 10 なされ、実用特性に近づいている。

【0004】上記の様な低分子材料を用いた電界発光素 子の他にも、発光層の材料として、ポリ(p-フェニレ ンビニレン)、ポリ[2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシル オキシ)-1,4-フェニレンビニレン]、ポリ(3-アルキル チオフェン)等の高分子材料を用いた電界発光素子の開 発や、ポリビニルカルバゾール等の高分子に低分子の発 光材料と電子移動材料を混合した素子の開発も行われて

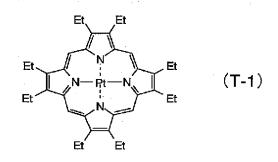
【0005】ところで素子の発光効率を挙げる試みとし を有することを特徴とする請求項1ないし6のいずれか 20 て、蛍光ではなく燐光を用いることも検討されている。 燐光を用いる、即ち、三重項励起状態からの発光を利用 すれば、従来の蛍光(一重項)を用いた素子と比べて、 3倍程度の効率向上が期待される。この目的のためにク マリン誘導体やベンゾフェノン誘導体を発光層とするこ とが検討されたが(第51回応用物理学会連合講演会、28 a-PB-7、1990年)、極めて低い輝度しか得られなかっ た。その後、三重項状態を利用する試みとして、ユーロ ピウム錯体を用いることが検討されてきたが、これも高 効率の発光には至らなかった。

> 【0006】最近、以下に示す白金錯体(T-1)を用 30 いることで、高効率の赤色発光が可能なことが報告され た (Nature, 395巻, 151頁, 1998年)。その後、以下に 示すイリジウム錯体 (T-2)を発光層にドープするこ とで、さらに緑色発光で効率が大きく改善されている (Appl. Phys. Lett., 75巻, 4頁, 1999年)。

[0007]

【化6】

40



【0008】

【化7】

$$\begin{bmatrix} \\ \\ \\ \\ \\ \end{bmatrix}_3$$
 (T-2)

[0009]

【発明が解決しようとする課題】有機電界発光素子をフ ラットパネル・ディスプレイ等の表示素子に応用するた 10 めには、素子の発光効率を改善すると同時に駆動時の安 定性を十分に確保する必要がある。しかしながら、前述 の文献に記載の燐光分子(T-2)を用いた高効率の有 機電界発光素子では、駆動安定性が実用には不十分であ るのが現状である (Jpn. J. Appl. Phys., 38巻, L1502) 頁,1999年)。

【〇〇1〇】上記の駆動劣化の主原因は、例えば基板/ 陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/ 陰極、の素子構造における正孔阻止層の薄膜形状の劣化 によると推定される。この薄膜形状の劣化は、素子駆動 20 時の発熱等による有機非晶質薄膜の結晶化(または凝 集)等に起因すると考えられている。この耐熱性の低さ は材料のガラス転移温度(以下Tgと略す)の低さに由来 すると考えられる。前述の文献(燐光分子として(T-2)を用いた素子に関するもの)では、正孔阻止層とし て以下に示すフェナントロリン化合物

[0011]

【化8】

【0012】を使用しているが、この化合物は分子量が 小さいために容易に結晶化・凝集して薄膜形状が劣化す る。正孔阻止層の役割は、陽極より注入された正孔が電 子輸送層にリークするのを阻止して、正孔と電子の再結 合領域を発光層内に限定することである。これにより発 40 光層の高効率化が可能となるが、正孔阻止層の薄膜の均*

*一性が結晶化・凝集により失われると、上記の正孔阻止 能力が低下し、結果として、発光効率及び発光輝度の低 下を招く。

6

【0013】上述の理由から、燐光分子を用いた有機電 界発光素子は、実用化に向けて素子の駆動安定性に大き な問題を抱えているのが実状である。有機電界発光素子 の駆動安定性が改善されないことは、フラットパネル・ ディスプレイ等の表示素子や照明等の応用を考える上で 望ましくない。本発明者は上記実状に鑑み、高効率かつ 高い駆動安定性を有する有機電界発光素子を提供するこ とを目的として鋭意検討した結果、正孔阻止層に特定の 有機金属錯体化合物を用いることで、上記課題を解決す ることができることを見い出し、本発明を完成するに至 った。

[0014]

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明の要旨 は、基板上に、陽極、発光層、および陰極が順次積層さ れてなる有機電界発光素子において、発光層が、N-フ ェニルカルバゾール骨格を有する化合物と、周期律表7 ないし11族から選ばれる少なくとも一つの金属を含む 有機金属錯体を含有しており、かつ、発光層と陰極との 間に下記一般式(I)で表される化合物を含有する正孔 阻止層を有することを特徴とする有機電界発光素子に存 する。

[0015]

【化9】

$$\begin{bmatrix} R^2 & R^1 \\ R^3 & N \\ R^4 & O \end{bmatrix}_{2} M-X \qquad (1)$$

【0016】(式中、R1~R6 は水素原子または任意 の置換基を表し、Mはアルミニウム、ガリウム、インジ ウムから選ばれる金属原子を表す。一般式(I)中、X は以下に示す一般式(Ia)、(Ib)、(Ic)のいずれか で表される。)

[0017]

【化10】

$$-O-Ar^1$$
 (Ia) $-O-C-Ar^2$ (Ib) $-O-Ar^4$ (Ic)

30

【0018】(式中、Ar¹~Ar⁵は、置換基を有してい てもよい芳香族炭化水素環基または置換基を有していて もよい芳香族複素環基を表し、Yはシリコンまたはゲル マニウムを表す。)

[0019]

※【発明の実施の態様】本発明は、N-フェニルカルバゾ ール骨格を有する化合物と、周期律表7族ないし11族 から選ばれる少なくとも一つの金属を含む有機金属錯体 を含有する発光層をもつ、いわゆる燐光を利用した有機 ※50 電界発光素子において、前記一般式(I)で表される化

合物を含んだ正孔阻止層を有する点が特徴である。また 本発明における「正孔阻止層」は、発光層の陰極側の界 面に接して設けられている層をさす。

【0020】前記一般式(I)において、 $R^1 \sim R^6$ は 水素原子または任意の置換基を表すが、好ましくは水素 原子; 塩素、臭素等のハロゲン原子; メチル基、エチル 基等の炭素数1~6のアルキル基:ベンジル基等のアラ ルキル基:ビニル基等の炭素数2~6のアルケニル基: シアノ基;アミノ基;アシル基;メトキシ基、エトキシ ル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1~6のアルコ キシカルボニル基:カルボキシル基:フェノキシ基、ベ ンジルオキシ基などのアリールオキシ基; ジエチルアミ ノ基、ジイソプロピルアミノ基等のジアルキルアミノ 基; ジベンジルアミノ基、ジフェネチルアミノ基などの ジアラルキルアミノ基;トリフルオロメチル基等のα-ハロアルキル基;水酸基;置換基を有していてもよいフ ェニル基、ナフチル基等の芳香族炭化水素環基;置換基 を有していてもよいチエニル基、ピリジル基等の芳香族 複素環基を表わす。

【0021】前記芳香族炭化水素環および芳香族複素環 が取りうる置換基としては、フッ素原子等のハロゲン原 子;メチル基、エチル基等の炭素数1~6のアルキル

8

基;ビニル基等のアルケニル基;メトキシカルボニル 基、エトキシカルボニル基等の炭素数1~6のアルコキ シカルボニル基:メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1 ~6のアルコキシ基;フェノキシ基、ベンジルオキシ基 などのアリールオキシ基:ジメチルアミノ基、ジエチル アミノ基等のジアルキルアミノ基、アセチル基等のアシ ル基、トリフルオロメチル基等のハロアルキル基、シア ノ基等が挙げられる。

【0022】R1ないしR6としてより好ましくは水素原 基等の炭素数1~6のアルコキシ基;メトキシカルボニ 10 子、アルキル基、ハロゲン原子、またはシアノ基が挙げ られる。またR4としては、特にシアノ基が好ましい。 MはA1 原子、Ga 原子またはIn原子を示す。Xは前記 一般式(Ia)、(Ib)、または(Ic)のいずれかで表わ され、各式中、YはSi またはGe のいずれかの原子を 表し、Ar¹~Ar⁵は、置換基を有していてもよいフェニ ル基、ビフェニル基、ナフチル基等の芳香族炭化水素環 基またはチエニル基、ピリジル基等の芳香族複素環基を 表わす。

> 【0023】前記一般式(I)で表わされる化合物の好 20 ましい具体例を以下の表1~表2に示すが、これらに限 定するものではない。

[0024]

【表1】

9

$$\begin{bmatrix} R^2 & R^1 \\ R^3 & N \\ R^4 & O \end{bmatrix}_2 M - X$$

番号	М	R¹∼R³	R⁴~R ⁶	X
(1)	Al	R¹ :CH₃		-0-
(2)	Al	R¹: —CH₃	_	-0-{
(3)	Aİ	R¹: −CH3 R³: −CH3	-	-0-(
(4)	Al	R¹∶—CH3	R⁴ : —CN	
(5)	AI	R¹ : −CH3 R³ : −CH3	R⁴: —CN	H₃C -o- H₃C
(6)	Ga	R¹∶—CHa	R⁴: —CN	H ₃ C -0 \\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\
(7)	Al	R¹∶—CH₃	<u> </u>	-o.c
(8)	Ga	R¹∶—CH3	_	-o.c
(9)	Al	R¹: —СНз R³: —СНз	_	-o. _c ⇔
(10)	Al	R¹: —CH3 R³: —CH3	R⁴ : —CN	-o.c
(11)	Al	R1: —CH3	R ⁴ : —CI	-o.c

[0025]

* *【表2】

	1 1			1 4
番号	М	R¹~-R³	R⁴~R ⁶	Х
(12)	Al	R¹∶ÇH₃	_	-o si-
(13)	Al	R¹:CH₃ R³:CH₃	_	-o-si-
(14)	Al	R¹∶—CH₃	R⁴: —CN	
(15)	Al	R¹∶—CH₃ R³∶—CH₃	R⁴: —CN	
(16)	Ga	R¹ : —CH₃ R³ : —CH₃	R⁴∶—CN	
(17)	Al	R¹∶—CH₃		-O·Si CH₃ 3
(18)	Al ·	R¹ : −CH₃	R⁴∶ —CN	-O·si
(19)	Al	R¹: —CH₃ R³: —CH₃	_	-0·si(-€)3
(20)	Ga	R¹∶—CH₃ R³∶—CH₃		-O·Si CH₃ 3

【0026】尚、表中、R¹ ~R⁶ で特に示していないもの、および「一」と記載されたものは水素原子を表わす。これらの化合物は、単独で用いてもよいし、必要に応じて、各々、混合して用いてもよい。本発明の有機電界発光素子における発光層に含まれる、N-フェニルカ*

*ルバゾール骨格を有する化合物としては、好ましくは下記一般式 (II)

[0027]

【化11】

【0028】(式中、Zは2価の連結基を示す。カルバ ゾリル基およびフェニレン基は、各々任意の置換基を有 していてもよい。)で表される化合物が挙げられ、より※

※好ましくは下記一般式(II')

【0029】

【化12】

12

$$R^{10}$$
 R^{10}
 【0030】(式中、R7~R18は各々独立に、水素原 ニル基、シアノ基、アミノ基、アシル基、アルコキシカ ルボニル基、カルボキシル基、アルコキシ基、アルキル アミノ基、アラルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸 基、アリールオキシ基、置換基を有していてもよい芳香 族炭化水素環基または芳香族複素環基を表わし、R7 と*

13

* R^{8} \ R^{9} \ ER^{10} \ R^{11} \ ER^{12} \ R^{13} \ ER^{14} \ R^{15} \ ER^{14} 子、ハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アルケ 10 16、R17とR18はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形 成してもよい。Zは2価の連結基を示し、より具体的に は直接結合、酸素原子、硫黄原子、以下に示す連結基、

[0031]

【化13】

【0032】置換基を有していてもよい芳香族炭化水素 環基または芳香族複素環基、または、以下に示す一般式 (IIa) 、(IIb) のいずれかで表される。

[0033]

【化14】

$$^{Ar^6}$$
 (IIa) $^{Ar^7}$ (IIb)

【0034】(式中、Ar⁶及びAr⁷は、各々独立して、 置換基を有していてもよい2価の芳香族炭化水素環基ま たは芳香族複素環基、または以下の一般式(III) で表 わされる。

[0035]

【化15】

$$R^{19}$$
 R^{20}
 R^{23}
 R^{21}
 R^{24}
 R^{22}
 R^{24}

【0036】(式中、R19~R24は各々独立に、水素原 子、ハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アルケ ニル基、シアノ基、アミノ基、アシル基、アルコキシカ ルボニル基、カルボキシル基、アルコキシ基、アルキル アミノ基、アラルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸 基、アリールオキシ基、置換基を有していてもよい芳香 族炭化水素環基または芳香族複素環基を表わし、R19と R^{20} 、 R^{21} と R^{22} 、 R^{23} と R^{24} はそれぞれ隣接する置換 $\%50-R^{12}$ 、 R^{13} と R^{14} 、 R^{15} と R^{16} 、 R^{17} と R^{18} はそれぞれ

20%基同士で環を形成してもよい。))で表される化合物が 挙げられる。

【0037】前記一般式(II')において、R⁷~R¹⁸ として具体的には、水素原子; ハロゲン原子; メチル 基、エチル基等の炭素数1~6のアルキル基:ベンジル 基等のアラルキル基;ビニル基等の炭素数2~6のアル ケニル基:シアノ基:アミノ基:アシル基:メトキシ 基、エトキシ基等の炭素数1~6のアルコキシ基;メト キシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数2 ~6のアルコキシカルボニル基:カルボキシル基:フェ 30 ノキシ基、ベンジルオキシ基などのアリールオキシ基; ジエチルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基等のジアル キルアミノ基; ジベンジルアミノ基、ジフェネチルアミ ノ基などのジアラルキルアミノ基; トリフルオロメチル 基等のα-ハロアルキル基;水酸基;置換基を有してい てもよいフェニル基、ナフチル基等の芳香族炭化水素環 基;置換基を有していてもよいチエニル基、ピリジル基 等の芳香族複素環基を表す。

【0038】前記芳香族炭化水素環基及び芳香族複素環 基が取りうる置換基としては、フッ素原子等のハロゲン 40 原子;メチル基、エチル基等の炭素数1~6のアルキル 基;ビニル基等の炭素数2~6のアルケニル基;メトキ シカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数2~ 6のアルコキシカルボニル基:メトキシ基、エトキシ基 等の炭素数1~6のアルコキシ基:フェノキシ基、ベン ジルオキシ基などのアリールオキシ基:ジメチルアミノ 基;ジエチルアミノ基等のジアルキルアミノ基;アセチ ル基等のアシル基:トリフルオロメチル基等のハロアル キル基:シアノ基等が挙げられる。

【0039】なおR7とR8、R9とR10、R11と

隣接する置換基同士で結合し、ベンゼン環、シクロヘキ *連結基、 サン環等を形成してもよい。Zは2価の連結基を示し、 [0040] 好ましくは直接結合、酸素原子、硫黄原子、以下に示す* 【化16】

【0041】置換基を有していてもよいベンゼン環等の 芳香族炭化水素環基またはチオフェン環等の芳香族複素 いずれかで表される。

[0042]

【化17】



【0043】式中、Ar⁶及びAr⁷は、各々独立して、置 換基を有していてもよいベンゼン環、ナフタレン環等の 芳香族炭化水素環基またはチオフェン環、フラン環、ピ 20 リジン環等の芳香族複素環基、または以下の一般式(II I) で表わされる。

[0044]

【化18】

【0045】式中、R19~R24は各々独立に、水素原 子;ハロゲン原子;メチル基、エチル基等の炭素数1~ 6のアルキル基;ベンジル基等のアラルキル基;ビニル 基等のアルケニル基;シアノ基;アミノ基;アシル基; メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1~6のアルコキシ 基;メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の 炭素数2~6のアルコキシカルボニル基:カルボキシル 基;フェノキシ基、ベンジルオキシ基などのアリールオ キシ基;ジエチルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基等 40 のジアルキルアミノ基; ジベンジルアミノ基、ジフェネ チルアミノ基などのジアラルキルアミノ基; トリフルオ ロメチル基等のα-ハロアルキル基: 水酸基: 置換基を 有していてもよいフェニル基、ナフチル基等の芳香族炭 化水素環基:置換基を有していてもよいチエニル基。ピ リジル基等の芳香族複素環基を表わす。

【0046】前記芳香族炭化水素環基および芳香族複素 環基が取りうる置換基としては、フッ素原子等のハロゲ ン原子:メチル基、エチル基等の炭素数1~6のアルキ ル基;ビニル基等の炭素数2~6のアルケニル基;メト※50

※キシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1 ~6のアルコキシカルボニル基;メトキシ基、エトキシ 環基、または、以下に示す一般式(Ha) 、(Hb) の 10 基等の炭素数1~6のアルコキシ基;フェノキシ基、ベ ンジルオキシ基などのアリールオキシ基;ジメチルアミ ノ基、ジエチルアミノ基等のジアルキルアミノ基;アセ チル基等のアシル基;トリフルオロメチル基等のハロア ルキル基;シアノ基等が挙げられる。

16

[0047] $$c^{19} \times R^{20} \times R^{21} \times R^{22} \times R^{23} \times R^{24}$ はそれぞれ隣接する置換基同士で結合し、ベンゼン環や シクロヘキサン環環を形成してもよい。前記一般式(I I')で表わされる化合物の好ましい具体例を以下に示 すが、これらに限定するものではない。

【0048】 【化19】

30

20

【0049】 【化20】

【0050】これらの化合物は、単独で用いてもよい し、必要に応じて、各々、混合して用いてもよい。次 に、本発明の有機電界発光素子における発光層に含まれ る、周期律表7ないし11族から選ばれる少なくとも一 つの金属を含む有機金属錯体について説明する。この燐 光性の有機金属錯体が含有する金属として、好ましく は、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウ ム、オスミウム、イリジウム、白金、および金が挙げら れる。

【0051】これらの有機金属錯体は、例えば下記一般式(IV)で表される。

40 [0052]

【化21】

$$\begin{bmatrix} A_1 \\ O \\ C \end{bmatrix}_M \qquad (IV)$$

【0053】式中、Mは金属、nは該金属の価数をあら わす。環A1は置換基を有していてもよい芳香族炭化水 50 素環基または芳香族複素環基を表わし、好ましくは、フ

2.0

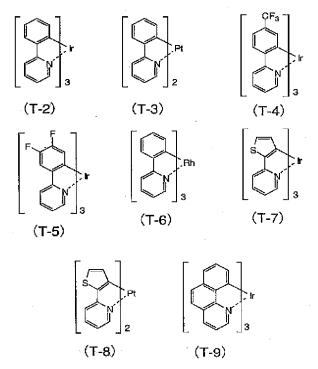
ェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、 チエニル基、ピリジル基、キノリル基、またはイソキノ リル基を表す。これらが有していてもよい置換基として は、フッ素原子等のハロゲン原子;メチル基、エチル基 等の炭素数1~6のアルキル基:ビニル基等の炭素数2 ~6のアルケニル基:メトキシカルボニル基、エトキシ カルボニル基等の炭素数2~6のアルコキシカルボニル 基:メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1~6のアルコ キシ基;フェノキシ基、ベンジルオキシ基などのアリー ジアルキルアミノ基; アセチル基等のアシル基; トリフ ルオロメチル基等のハロアルキル基;シアノ基等が挙げ られる。

【0054】環A2 は置換基を有していてもよい含窒素 芳香族複素環基を表わし、好ましくは、ピリジル基、ピ リミジル基、ピラジン基、トリアジン基、ベンゾチアゾ ール基、ベンゾオキサゾール基、ベンゾイミダゾール 基、キノリル基、イソキノリル基、キノキサリン基、ま たはフェナントリジン基を表わす。これらが有していて もよい置換基としては、フッ素原子等のハロゲン原子; メチル基、エチル基等の炭素数1~6のアルキル基;ビ ニル基等の炭素数2~6のアルケニル基;メトキシカル* *ボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数2~6のア ルコキシカルボニル基;メトキシ基、エトキシ基等の炭 素数2~6のアルコキシ基;フェノキシ基、ベンジルオ キシ基などのアリールオキシ基;ジメチルアミノ基、ジ エチルアミノ基等のジアルキルアミノ基:アセチル基等 のアシル基:トリフルオロメチル基等のハロアルキル 基:シアノ基等が挙げられる。

【0055】なお、環A1が有する置換基と環A2が有す る置換基が結合することにより、一つの縮合環を形成し ルオキシ基;ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等の 10 てもよく、このような例としては7,8-ベンゾキノリン基 等が挙げられる。環A1および環A2の置換基として、よ り好ましくはアルキル基、アルコキシ基、芳香族炭化水 素環基またはシアノ基が挙げられる。式(IV)における Mとして好ましくは、ルテニウム、ロジウム、パラジウ ム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、ま たは金が挙げられる。

> 【0056】前記一般式(IV)で示される有機金属錯体 の具体例を以下に示すが、下記の化合物に限定されるわ けではない。

【0057】 【化22】



【0058】以下、本発明の有機電界発光素子につい て、図面を参照しながら説明する。図1は本発明に用い られる一般的な有機電界発光素子の構造例を模式的に示 す断面図であり、1は基板、2は陽極、4は正孔輸送 層、5は発光層、6は正孔阻止層、8は陰極を各々表わ す。基板1は有機電界発光素子の支持体となるものであ り、石英やガラスの板、金属板や金属箔、プラスチック※50 することがあるので好ましくない。このため、合成樹脂

※フィルムやシートなどが用いられる。特にガラス板や、 ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネー ト、ポリスルホンなどの透明な合成樹脂の板が好まし い。合成樹脂基板を使用する場合にはガスバリア性に留 意する必要がある。基板のガスバリヤ性が小さすぎる と、基板を通過した外気により有機電界発光素子が劣化 基板の少なくとも片面に緻密なシリコン酸化膜等を設けてガスバリア性を確保する方法も好ましい方法の一つである。

【0059】基板1上には陽極2が設けられるが、陽極 2は正孔輸送層への正孔注入の役割を果たすものであ る。この陽極は、通常、アルミニウム、金、銀、ニッケ ル、パラジウム、白金等の金属、インジウム及び/また はスズの酸化物などの金属酸化物、ヨウ化銅などのハロ ゲン化金属、カーボンブラック、あるいは、ポリ(3-メ チルチオフェン)、ポリピロール、ポリアニリン等の導 10 電性高分子などにより構成される。陽極2の形成は通 常、スパッタリング法、真空蒸着法などにより行われる ことが多い。また、銀などの金属微粒子、ヨウ化銅など の微粒子、カーボンブラック、導電性の金属酸化物微粒 子、導電性高分子微粉末などの場合には、適当なバイン ダー樹脂溶液に分散し、基板1上に塗布することにより 陽極2を形成することもできる。さらに、導電性高分子 の場合は電解重合により直接基板1上に薄膜を形成した り、基板1上に導電性高分子を塗布して陽極2を形成す ることもできる (Appl. Phys. Lett., 60巻, 2711頁, 1992年)。陽極2は異なる物質で積層して形成すること も可能である。陽極2の厚みは、必要とする透明性によ り異なる。透明性が必要とされる場合は、可視光の透過 率を、通常、60%以上、好ましくは80%以上とすること が望ましく、この場合、厚みは、通常、5~1000nm、好 ましくは10~500nm程度である。不透明でよい場合は陽 極2は基板1と同一でもよい。また、さらには上記の陽 極2の上に異なる導電材料を積層することも可能であ

【0060】陽極2の上には正孔輸送層4が設けられる。正孔輸送層の材料に要求される条件としては、陽極からの正孔注入効率が高く、かつ、注入された正孔を効率よく輸送することができる材料であることが必要である。そのためには、イオン化ポテンシャルが小さく、可視光の光に対して透明性が高く、しかも正孔移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくいことが要求される。また図1の構成の素子の場合、発光層5に接するために発光層からの発光を消光したり、発光層との間でエキサイプレックスを形成して効率を低下させないことが求められる。上記の一般的要求以外に、車載表示用の応用を考えた場合、素子にはさらに耐熱性が要求される。従って、Tgとして85℃以上の値を有する材料が望ましい。

【0061】このような正孔輸送材料としては、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニルで代表される2個以上の3級アミンを含み2個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族ジアミン(特開平5-234681号公報)、4,4',4"-トリス(1-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン等のスターバースト構造を有する芳香族アミン化合物(J. Lumi

22

n., 72-74巻、985頁、1997年)、トリフェニルアミンの 四量体から成る芳香族アミン化合物 (Chem. Commun., 21 75頁、1996年)、2,2',7,7'-テトラキス-(ジフェニルアミノ)-9,9'-スピロビフルオレン等のスピロ化合物 (Syn th. Metals, 91巻、209頁、1997年)等が挙げられる。これらの化合物は、単独で用いてもよいし、必要に応じて、各々、混合して用いてもよい。

【0062】上記の化合物以外に、正孔輸送層4の材料として、ポリビニルカルバゾール、ポリビニルトリフェニルアミン(特開平7 - 53953号公報)、テトラフェニルベンジジンを含有するポリアリーレンエーテルサルホン(Polym. Adv. Tech., 7巻、33頁、1996年)等の高分子材料が挙げられる。塗布法の場合は、正孔輸送材料を1種または2種以上と、必要により正孔のトラップにならないバインダー樹脂や塗布性改良剤などの添加剤とを添加し、溶解して塗布溶液を調製し、スピンコート法などの方法により陽極2上に塗布し、乾燥して正孔輸送層3bを形成する。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ボリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂は添加量が多いと正孔移動度を低下させるので、少ない方が望ましく、通常、50重量%以下が好ましい。

【0063】真空蒸着法の場合には、正孔輸送材料を真空容器内に設置されたルツボに入れ、真空容器内を適当な真空ポンプで10-4Pa程度にまで排気した後、ルツボを加熱して、正孔輸送材料を蒸発させ、ルツボと向き合って置かれた、陽極が形成された基板1上に正孔輸送層4を形成させる。正孔輸送層4の膜厚は、通常、5~300nm、好ましくは10~100nmである。この様に薄い膜を一様に形成するためには、一般に真空蒸着法がよく用いられる。

【0064】正孔輸送層4の上には発光層5が設けられる。発光層5は、前述したN-フェニルカルバゾール骨格を有する化合物と、前述した周期律表7ないし11族から選ばれる金属を含む有機金属錯体を含み、電界を与えられた電極間において、陽極から注入されて正孔輸送層を移動する正孔と、陰極から注入されて正孔阻止層6を移動する電子との再結合により励起されて、強い発光を示す。

40 【0065】本発明の有機電界発光素子における発光層は、前記N-フェニルカルバゾール骨格を有する化合物と、前記有機金属錯体を含有するが、より好ましくは、主成分として前記N-フェニルカルバゾール骨格を有する化合物を、また副成分として前記有機金属錯体を含有する。ここで「主成分」とは該層を形成する材料のうち50重量%以上を占めるものを意味し、「副成分」とは該層を形成する材料のうち50重量%未満を占めるものを意味する。なお発光層5は、本発明の性能を損なわない範囲で、他のホスト材料(N-フェニルカルバゾール50 骨格を有する化合物と同様の働きを行う)や蛍光色素な

ど、他成分を含んでいても良い。

【0066】前記一般式(IV)で表わされる有機金属錯体が発光層中に含有される量は、0.1~30重量%の範囲にあることが好ましい。0.1重量%以下では素子の発光効率向上に寄与できず、30重量%を越えると有機金属錯体同士が2量体を形成する等の濃度消光が起き、発光効率の低下に至る。従来の蛍光(一重項)を用いた素子において、発光層に含有される蛍光性色素(ドーパント)の量より、若干多い方が好ましい傾向がある。有機金属錯体が発光層中に膜厚方向に対して部分的に含まれたり、不均一に分布してもよい。

【0067】発光層5の膜厚は、通常、10~200 nm、好ましくは20~100 nmである。正孔輸送層4と同様の方法により薄膜形成される。本発明では、正孔阻止層として前記一般式(I)で表わされる化合物を含有する層を、発光層5の陰極8側の界面に接して配置することを特徴とする。正孔阻止層6は、正孔輸送層から移動してくる正孔を陰極に到達するのを阻止する役割と、陰極から注入された電子を効率よく発光層の方向に輸送することができる化合物より形成される。正孔阻止層を構成する材20料に求められる物性としては、電子移動度が高く正孔移動度が低いことが必要とされる。正孔阻止層6は正孔と電子を発光層内に閉じこめて、発光効率を向上させる機能を有する。

【0068】このような条件を満たす正孔阻止層材料としは、前記一般式(I)で表わされる混合配位子錯体が挙げられる。正孔阻止層6の膜厚は、通常、0.3~100 nm、好ましくは0.5~50nmである。正孔阻止層も正孔輸送層と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が用いられる。

【0069】陰極8は、正孔阻止層6を介して発光層5 に電子を注入する役割を果たす。陰極8として用いられ る材料は、前記陽極2に使用される材料を用いることが 可能であるが、効率よく電子注入を行なうには、仕事関 数の低い金属が好ましく、スズ、マグネシウム、インジ ウム、カルシウム、アルミニウム、銀等の適当な金属ま たはそれらの合金が用いられる。具体例としては、マグ ネシウムー銀合金、マグネシウムーインジウム合金、ア ルミニウムーリチウム合金等の低仕事関数合金電極が挙 げられる。さらに、陰極と発光層または電子輸送層の界 40 面にLiF 、MgF2、Li20等の極薄絶縁膜(0.1~5nm)を挿 入することも、素子の効率を向上させる有効な方法であ る (Appl. Phys. Lett., 70巻, 152頁, 1997年; 特開平 10- 74586号公報; IEEETrans. Electron. Devices, 44 巻, 1245頁, 1997年)。陰極8の膜厚は通常、陽極2と 同様である。低仕事関数金属から成る陰極を保護する目 的で、この上にさらに、仕事関数が高く大気に対して安 定な金属層を積層することは素子の安定性を増す。この 目的のために、アルミニウム、銀、銅、ニッケル、クロ ム、金、白金等の金属が使われる。

24

【0070】素子の発光効率をさらに向上させることを目的として、正孔阻止層6と陰極8の間に電子輸送層7を設けることが考えられる(図2参照)。電子輸送層7は、電界を与えられた電極間において陰極から注入された電子を効率よく正孔阻止層6の方向に輸送することができる化合物より形成される。電子輸送層7に用いられる電子輸送性化合物としては、陰極8からの電子注入効率が高く、かつ、高い電子移動度を有し注入された電子を効率よく輸送することができる化合物であることが必10要である。

【0071】このような条件を満たす材料としては、8 ーヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの金属錯体(特開昭59-194393号公報)、10-ヒドロキシベンゾ [h]キノリンの金属錯体、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルビフェニル誘導体、シロール誘導体、3-または5-ヒドロキシフラボン金属錯体、ベンズオキサゾール金属錯体、ベンゾチアゾール金属錯体、トリスベンズイミダゾリルベンゼン(米国特許第5,645,948号)、キノキサリン化合物(特開平6-207169号公報)、フェナントロリン誘導体(特開平5-331459号公報)、2-セーブチルー9,10-N,N'-ジシアノアントラキノンジイミン、n型水素化非晶質炭化シリコン、n型硫化亜鉛、n型セレン化亜鉛などが挙げられる。電子輸送層6の膜厚は、通常、5~200nm、好ましくは10~100 nmである。

【0072】電子輸送層7は、正孔輸送層4と同様にし て塗布法あるいは真空蒸着法により正孔阻止層6上に積 層することにより形成される。通常は、真空蒸着法が用 いられる。正孔注入の効率をさらに向上させ、かつ、有 機層全体の陽極への付着力を改善させる目的で、正孔輸 送層4と陽極2との間に陽極バッファ層3を挿入するこ とも行われている(図3参照)。陽極バッファ層3を挿 入することで、初期の素子の駆動電圧が下がると同時 に、素子を定電流で連続駆動した時の電圧上昇も抑制さ れる効果がある。陽極バッファ層に用いられる材料に要 求される条件としては、陽極とのコンタクトがよく均一 な薄膜が形成でき、熱的に安定、すなわち、融点及びガ ラス転移温度が高く、融点としては 300℃以上、ガラス 転移温度としては 100℃以上が要求される。さらに、イ オン化ポテンシャルが低く陽極からの正孔注入が容易な こと、正孔移動度が大きいことが挙げられる。

【0073】この目的のために、これまでに銅フタロシアニン等のタロシアニン化合物(特開昭63-295695号公報)、ポリアニリン(Appl. Phys. Lett., 64巻、1245頁,1994年)、ポリチオフェン(Optical Materials, 9巻、125頁、1998年)等の有機化合物や、スパッタ・カーボン膜(Synth. Met., 91巻、73頁、1997年)や、バナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、モリブデン酸化物等の金属酸化物(J.Phys. D, 29巻、2750頁、1996年)が報告されている。

50 【0074】陽極バッファ層の場合も、正孔輸送層と同

25

様にして薄膜形成可能であるが、無機物の場合には、さらに、スパッタ法や電子ビーム蒸着法、プラズマCVD法が用いられる。以上の様にして形成される陽極バッファ層3の膜厚は、通常、3~100nm、好ましくは5~50nmである。

【0075】尚、図1とは逆の構造、すなわち、基板上に陰極8、正孔阻止層6、発光層5、正孔輸送層4、陽極2の順に積層することも可能であり、既述したように少なくとも一方が透明性の高い2枚の基板の間に本発明の有機電界発光素子を設けることも可能である。同様に、図2および図3に示した前記各層構成とは逆の構造に積層することも可能である。

【0076】本発明は、有機電界発光素子が、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構造のいずれにおいても適用することができる。本発明の有機電界発光素子によれば、特定の骨格を有する化合物を発光層に、また正孔阻止層に正孔阻止能力の高く薄膜形状が安定な化合物を用いているため、従来の一重項状態からの発光を用いた素子よりも発光効率が高くかつ駆動安定性にお20いても大きく改善された素子が得られ、フルカラーあるいはマルチカラーのパネルへの応用において優れた性能を発揮できる。

[0077]

【実施例】次に、本発明を実施例によって更に具体的に 説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の 実施例の記載に限定されるものではない。

実施例1

図3に示す構造を有する有機電界発光素子を以下の方法 で作製した。

【 O O 7 8】ガラス基板上にインジウム・スズ酸化物 (ITO)透明導電膜を 150m堆積したもの(ジオマテック社製;電子ビーム成膜品;シート抵抗15Ω)を通常のフォトリソグラフィ技術と塩酸エッチングを用いて 2 mm幅のストライプにパターニングして陽極を形成した。パターン形成した ITO基板を、アセトンによる超音波洗浄、純水による水洗、イソプロピルアルコールによる超音波洗浄の順で洗浄後、窒素ブローで乾燥させ、最後に紫外線オゾン洗浄を行って、真空蒸着装置内に設置した。上記装置の粗排気を油回転ポンプにより行った後、装置内の真空度が2x10-6Torr(約2,7x10-4Pa)以下になるまで液体窒素トラップを備えた油拡散ポンプを用いて排気した。

【0079】上記装置内に配置されたモリブデンボート に入れた以下に示す銅フタロシアニン (結晶形は β 型)を加熱して蒸着を行った。真空度 $2x10^{-6}$ Torr (約 $2.7x10^{-4}$ Pa)、蒸着時間 1 分で蒸着を行ない、膜厚10nmの陽極 バッファ層3 を得た。

[0080]

【化23】

【0081】次に、前記装置内に配置されたセラミックるつぼに入れた、以下に示す、4,4'-ビス [N-(1-ナフチル) -N-フェニルアミノ] ビフェニル

[0082]

【化24】

【0083】をるつぼの周囲のタンタル線ヒーターで加熱して蒸着を行った。この時のるつぼの温度は、280~270℃の範囲で制御した。蒸着時の真空度1.5x10-6Torr

(約2.0x10⁻⁴Pa)、蒸着時間 3 分で膜厚60nmの正孔輸送層4を得た。引続き、発光層 5 主成分として、N-フェニルカルバゾール骨格を有する化合物 (H-1)を、燐光性有機金属錯体として (T-2)で示したイリジウム錯体を別々のセラミックるつぼに設置し、2元同時蒸着30 法により成膜を行った。化合物 (H-1)のるつぼ温度は210~220℃の範囲とし、蒸着速度は 0.2nm/秒に制御し、イリジウム錯体 (T-2)は290~295℃の温度範囲に制御し、膜厚30nmでイリジウム錯体 (T-2)が5重量%含有された発光層 5を正孔輸送層4の上に積層した。蒸着時の真空度は1.1x10⁻⁶Torr (約1.5x10⁻⁴Pa)であった。

【0084】さらに、正孔阻止層6として表2に示した化合物(12)をるつば温度を220℃として、蒸着速度0.1nm/秒で10nmの膜厚で積層した。蒸着時の真空度は1.0x10-6 Torr(約1.3x10-4 Pa)であった。正孔阻止層6の上に、電子輸送層7として以下の構造式に示すアルミニウムの8ーヒドロキシキノリン錯体、Al(CoHoNO)3、を同様にして蒸着した。

[0085]

【化25】

【0086】この時のアルミニウムの8-ヒドロキシキ 10 ノリン錯体のるつぼ温度は 280~ 300℃の範囲で制御し、蒸着時の真空度は1.0x10-6 Torr (約1.3x10-4 Pa)、蒸着速度は0.2nm/秒で膜厚は35nmとした。上記の陽極バッファ層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層及び電子輸送層を真空蒸着する時の基板温度は室温に保持した。【0087】ここで、電子輸送層7までの蒸着を行った素子を一度前記真空蒸着装置内より大気中に取り出して、陰極蒸着用のマスクとして 2mm幅のストライプ状シャドーマスクを、陽極2のITOストライプとは直交するように素子に密着させて、別の真空蒸着装置内に設置 20 して有機層と同様にして装置内の真空度が2x10-6 Torr (約2.7x10-4 Pa)以下になるまで排気した。陰極8とし*

*で、先ず、フッ化マグネシウム(MgF2)をモリブデンボートを用いて、蒸着速度0.1nm/秒、真空度7.0x10-6 Torr(約9.3x10-4 Pa)で、1.5 nmの膜厚で電子輸送層7の上に成膜した。次に、アルミニウムを同様にモリブデンボートにより加熱して、蒸着速度0.5nm/秒、真空度1x10-5 Torr(約1.3x10-3 Pa)で膜厚40nmのアルミニウム層を形成した。さらに、その上に、陰極の導電性を高めるために銀を、同様にモリブデンボートにより加熱して、蒸着速度0.3nm/秒、真空度1x10-5 Torr(約1.3x10-3 Pa)で膜厚40nmの銀層を形成して陰極8を完成させた。以上の3層型陰極8の蒸着時の基板温度は室温に保持した。

28

【0088】以上の様にして、2mmx2mm のサイズの発光 面積部分を有する有機電界発光素子が得られた。この素子の発光特性を表-3に示す。表-3において、発光輝度は250mA/cm²の電流密度での値、発光効率は 100cd/m²での値、輝度/電流は輝度-電流密度特性の傾きを、電圧は 100cd/m²での値を各々示す。素子の発光スペクトルの極大波長は 512nmであり、イリジウム錯体(T-2)からのものと同定された。

【0089】 【表3】

表一3

	発光輝度 [cd/m²] @250mA/cm²	発光効率 [lm/W] @100 cd/m²	輝度/電流 [cd/A]	電圧 [V] @100 cd/m²	発光極大 [nm]
実施例 1	31170	12.3	24.6	6.3	512
実施例2	26970	10.6	21.3	5.4	512
実施例3	6500	2.1	4.7	7.0	585
比較例1	.29890	19.5	31.8	5.2	512
比較例 2	9030	1.6	3.1	6.2	518

【0090】この素子の耐熱性試験を、250 mA/cm²という高い電流密度で駆動した時の輝度低下で評価した結果を図4のグラフに示す。

実施例2

正孔阻止層として表2に示した化合物(13)を用いた他 40 は、実施例1と同様にして素子を作製した。発光特性を表-3に示す。また実施例1と同様に行った、高電流密度における駆動安定性試験の結果を図4のグラフに示す。

【0091】実施例3

発光層に含有させる燐光性有機金属錯体として化合物 (T-8)を用いた他は実施例1と同様にして素子を作製した。発光特性を表-3に示す。白金錯体(T-8)に固有のオレンジ色の発光が観測された。

比較例1

※正孔阻止層として、下記フェナントロリン誘導体

[0092]

【化26】

【0093】を用いた他は実施例1と同様にして素子を作製した。この素子の発光特性を表-3と図4のグラフに示す。高電流密度での駆動安定性が低いことが明らかとなった。

※50 比較例2

作製した。この素子の発光特性を表一3に示す。特に発

【発明の効果】本発明の有機電界発光素子の陰極によれ ば、低電圧において高輝度・高効率で発光させることが

可能となり、さらには高電流密度の駆動においても安定

る。従って、本発明による有機電界発光素子はフラット

掛けテレビ)、車載表示素子、携帯電話表示や面発光体

としての特徴を生かした光源(例えば、複写機の光源、

液晶ディスプレイや計器類のバックライト光源)、表示

板、標識灯への応用が考えられ、その技術的価値は大き

パネル・ディスプレイ (例えばOAコンピュータ用や壁 10

であり、保存時の劣化の少ない素子を得ることができ

【図1】有機電界発光素子の一例を示した模式断面図。

【図2】有機電界発光素子の別の例を示した模式断面 図。

3.0

【図3】有機電界発光素子の別の例を示した模式断面

【図4】実施例1、2、および比較例1の駆動安定性試 験の結果を示したグラフ

【符号の説明】

- 基板 1
- 陽極 2
- 3 陽極バッファ層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 正孔阻止層
- 7 電子輸送層
- 8 陰極

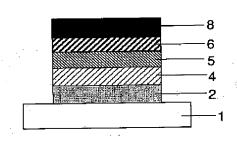
光効率が大きな低下がみられた。

[0094]

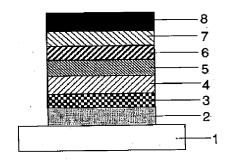
いものである。

【図面の簡単な説明】

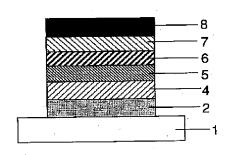
【図1】



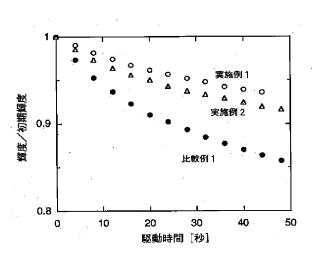
【図3】



【図2】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 畚野 真代 神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地 三菱化学株式会社横浜総合研究所内 F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB12 CA01 CB01 DA01 DB03 EA02 EB00 **DERWENT-ACC-NO:** 2002-321485

DERWENT-WEEK: 200236

COPYRIGHT 2008 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Organic electroluminescent device for flat

panel display, is formed by laying up an anode, a light emitting layer, and a cathode

on a substrate

INVENTOR: FUGONO M; SATO H; SATO Y

PATENT-ASSIGNEE: MITSUBISHI CHEM CORP[MITU]

PRIORITY-DATA: 2000JP-116124 (April 18, 2000)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO PUB-DATE LANGUAGE

JP 2002008860 A January 11, 2002 JA

APPLICATION-DATA:

PUB-NO APPL-DESCRIPTOR APPL-NO APPL-DATE

JP2002008860A N/A 2000JP- May 9,

135306 2000

INT-CL-CURRENT:

TYPE IPC DATE

CIPP H01L51/50 20060101

CIPS	C09K11/06 20060101
CIPS	H05B33/12 20060101
CIPS	H05B33/14 20060101
CIPS	H05B33/22 20060101

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 2002008860 A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - An organic electroluminescent device is formed by successively laying up an anode, a light emitting layer, and a cathode on a substrate.

DESCRIPTION - The light emitting layer contains a compound having an N-phenyl carbazole skeleton and an organic metal complex containing at least one metal of Group 7 to Group 11. A hole inhibiting layer containing a compound of formula (I) is provided between the light emitting layer and the cathode.

R1-6 = H, or optional substituent;

M = aluminum, gallium, or indium;

X = -O-Ar1, -O-C(O)-Ar2, or -O-Y(Ar3)(Ar5)-Ar4;

Ar1-5 = optionally substituent-bearing aromatic hydrocarbon cycle, or optionally substituent-bearing aromatic heterocycle;

Y = silicon, or germanium.

USE - The organic electroluminescent device is used for a flat panel display; on-vehicle display device; light source for copying machine, liquid crystal display, measuring instruments; display board; marker lamp.

ADVANTAGE - The use of the cathode emits light with high brightness and high efficiency at a low voltage, and has stability in high-current density driving, and less shelf life deterioration.

TITLE-TERMS: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

FLAT PANEL DISPLAY FORMING LAY UP ANODE LIGHT EMIT LAYER CATHODE

SUBSTRATE

DERWENT-CLASS: E12 E23 L03 S06 U11 U12 U14 X22 X26

CPI-CODES: E05-B03; E05-D; E05-E; E05-E01; E05-F02;

E05-M; E05-N; E06-D13; L03-G05F;

EPI-CODES: S06-A03E1;

CHEMICAL-CODES: Chemical Indexing M3 *01* Fragmentation

Code A313 A960 C710 D012 D021 D621 G010 G013 G100 H4 H401 H441 H8 M111 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M532 M540 M630

M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA281H Registry Numbers

307306

Chemical Indexing M3 *02* Fragmentation Code A313 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D012 D021 D621 G010 G019 G100 H401 H441 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds

RA2RFH Registry Numbers 333898

Chemical Indexing M3 *03* Fragmentation Code A313 A960 C710 D013 D021 D621 G010 G013 G100 H4 H401 H441 H8 M111 M210 M211 M240 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M532 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6CDJ Registry Numbers 506492

Chemical Indexing M3 *04* Fragmentation Code A313 A960 C710 D012 D023 D621 G010 G013 G100 H4 H401 H441 H8 L143 M111 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M532 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QMW Registry Numbers 525495

Chemical Indexing M3 *05* Fragmentation Code A313 A960 C710 D013 D023 D621 G014 G100 H4 H401 H441 H8 L143 M210 M211 M240 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QMX Registry Numbers 525496

Chemical Indexing M3 *06* Fragmentation Code A331 A960 C710 D012 D023 D621 G014 G100 H4 H401 H441 H8 L143 M210 M211 M240 M281 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QMY Registry Numbers 525497

Chemical Indexing M3 *07* Fragmentation Code A313 A960 C710 D012 D021 D621 G021 G221 H401 H441 J011 J131 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds

RA6QMZ Registry Numbers 525498

Chemical Indexing M3 *08* Fragmentation Code A331 A960 C710 D012 D021 D621 G021 G221 H401 H441 J011 J131 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN0 Registry Numbers 525499

Chemical Indexing M3 *09* Fragmentation Code A313 A960 C710 D013 D021 D621 G021 G221 H401 H441 J011 J131 M210 M211 M240 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN1 Registry Numbers 525500

Chemical Indexing M3 *10* Fragmentation Code A313 A960 C710 D013 D023 D621 G021 G221 H401 H441 J011 J131 L143 M210 M211 M240 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN2 Registry Numbers 525501

Chemical Indexing M3 *11* Fragmentation Code A313 A960 C710 D012 D023 D621 G021 G221 H401 H441 H602 H641 J011 J131 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN3 Registry Numbers 525502

Chemical Indexing M3 *12* Fragmentation

Code D011 D019 E100 E199 G013 G019 G100 H1 H142 H2 H202 M1 M111 M280 M320 M412 M424 M512 M520 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA0277 Registry Numbers 203241

Chemical Indexing M3 *13* Fragmentation Code A313 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D013 D021 D621 G010 G019 G100 H401 H441 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN4 Registry Numbers 525503

Chemical Indexing M3 *14* Fragmentation Code A313 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D012 D023 D621 G010 G019 G100 H401 H441 L143 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN5 Registry Numbers 525504

Chemical Indexing M3 *15* Fragmentation Code A313 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D013 D023 D621 G010 G019 G100 H401 H441 L143 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN6 Registry Numbers 525505

Chemical Indexing M3 *16* Fragmentation

Code A331 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D013 D023 D621 G010 G019 G100 H401 H441 L143 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M282 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN7 Registry Numbers 525506

Chemical Indexing M3 *17* Fragmentation Code A313 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D012 D021 D621 G011 G019 G100 H401 H441 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M281 M283 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QN8 Registry Numbers 525507

Chemical Indexing M3 *18* Fragmentation
Code A313 A960 B514 B711 B720 B743
B831 C710 D012 D023 D621 G011 G019
G100 H401 H441 L143 M121 M129 M144
M210 M211 M240 M281 M283 M320 M411
M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540
M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific
Compounds RA6QN9 Registry Numbers
525508

Chemical Indexing M3 *19* Fragmentation Code A313 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D013 D021 D621 G011 G019 G100 H401 H441 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M282 M283 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNA Registry Numbers

Chemical Indexing M3 *20* Fragmentation Code A331 A960 B514 B711 B720 B743 B831 C710 D013 D021 D621 G011 G019 G100 H401 H441 M121 M129 M144 M210 M211 M240 M282 M283 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNB Registry Numbers 525510

Chemical Indexing M3 *21* Fragmentation Code A678 A960 A970 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 F012 F431 G010 G100 M1 M113 M280 M320 M411 M424 M510 M521 M531 M540 M640 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA5ID0 Registry Numbers 466210

Chemical Indexing M3 *22* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 G013 G019 G100 H1 H142 H2 H202 H7 H721 M1 M121 M133 M280 M312 M321 M332 M342 M412 M424 M512 M520 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNG Registry Numbers 525515

Chemical Indexing M3 *23* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 G017 G019 G100 H1 H142 H2 H202 M1 M111 M210 M211 M240 M283 M320 M412 M424 M512 M520 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNH Registry Numbers 525516

Chemical Indexing M3 *24* Fragmentation

Code D011 D019 E100 E199 G022 G029 G221 G299 H1 H142 H2 H202 M1 M114 M280 M320 M412 M424 M512 M520 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNI Registry Numbers 525517

Chemical Indexing M3 *25* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 G013 G019 G100 H1 H142 H2 H202 M1 M111 M119 M280 M320 M412 M424 M512 M520 M533 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNJ Registry Numbers 525518

Chemical Indexing M3 *26* Fragmentation Code A313 A960 C710 D012 D021 D621 G010 G100 H4 H401 H441 H8 M210 M211 M240 M281 M320 M411 M424 M510 M511 M520 M530 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA2I9A Registry Numbers 321027

Chemical Indexing M3 *27* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 F012 F015 F211 G013 G019 G100 H1 H142 H2 H202 M1 M113 M119 M280 M320 M412 M424 M512 M521 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNL Registry Numbers 525520

Chemical Indexing M3 *28* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 F012 F015 F111 G013 G019 G100 H1 H142 H2 H202 M1 M113 M119 M280 M320 M412 M424 M512 M521 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNM

Registry Numbers 525521

Chemical Indexing M3 *29* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 G013 G019 G022 G112 G331 H1 H142 H2 H202 M1 M112 M119 M280 M320 M412 M424 M512 M520 M533 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNN Registry Numbers 525522

Chemical Indexing M3 *30* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 G013 G019 G031 G038 G112 G310 H1 H142 H2 H202 M1 M113 M119 M150 M280 M320 M412 M424 M512 M520 M533 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNO Registry Numbers 525523

Chemical Indexing M3 *31* Fragmentation Code D011 D019 D022 D029 E100 E199 G013 G019 G100 H1 H142 H2 H202 M1 M111 M210 M211 M240 M283 M320 M412 M424 M512 M520 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNP Registry Numbers 525524

Chemical Indexing M3 *32* Fragmentation Code A677 A960 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 F012 F431 G010 G100 M1 M113 M280 M320 M411 M424 M510 M521 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNS Registry Numbers 525527

Chemical Indexing M3 *33* Fragmentation Code A678 A960 A970 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 F012 F019 F211 F431 M1 M116 M280 M320 M411 M424 M510 M522 M530 M540 M640 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA5ID4 Registry Numbers 466214

Chemical Indexing M3 *34* Fragmentation Code A677 A960 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 F012 F019 F211 F431 M1 M116 M280 M320 M411 M424 M510 M522 M530 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNW Registry Numbers 525531

Chemical Indexing M3 *35* Fragmentation Code D011 D019 E100 E199 G013 G019 G100 H1 H142 H2 H202 J5 J581 M1 M121 M131 M150 M280 M320 M412 M424 M512 M520 M532 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNK Registry Numbers 525519

Chemical Indexing M3 *36* Fragmentation Code A677 A960 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 D000 E160 M280 M320 M411 M424 M511 M520 M530 M540 M740 M782 Q454 R023 R043 Ring Index Numbers 03524 Specific Compounds RA6QNX Registry Numbers 525532

Chemical Indexing M3 *37* Fragmentation Code A545 A960 C710 F012 F431 G010 G100 M1 M113 M280 M320 M411 M424 M510 M521 M531 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Specific Compounds RA6QNY Registry Numbers 525533

Chemical Indexing M3 *38* Fragmentation

Code A313 A331 A332 A349 A923 A940 A960 B514 B614 B711 B720 B743 B831 C710 D010 D011 D012 D013 D014 D019 D020 D021 D023 D024 D025 D029 D040 D049 D621 F010 F019 F020 F029 G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029 G040 G100 G111 G112 G113 G221 G299 H401 H421 H441 H600 H602 H607 H608 H609 H621 H622 H623 H641 H642 H643 J011 J111 J131 L142 L143 L199 M111 M119 M121 M122 M123 M124 M125 M126 M129 M144 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M280 M281 M282 M283 M320 M411 M424 M510 M511 M512 M513 M520 M521 M522 M523 M530 M531 M532 M533 M540 M630 M740 M782 Q454 R023 R043 Markush Compounds 006014301

Chemical Indexing M3 *39* Fragmentation
Code D011 D019 D021 D022 D023 D029
E100 E199 G013 G015 G017 G019 G100 H1
H142 H2 H202 H600 H608 H609 H641 H642
H643 M1 M111 M210 M211 M212 M213
M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223
M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240
M280 M281 M282 M283 M320 M412 M424
M512 M520 M532 M540 M740 M782 Q454
R023 R043 Markush Compounds 006014302

Chemical Indexing M3 *40* Fragmentation Code C316 D010 D011 D019 D020 D021 D022 D023 D029 D040 E100 E199 F010 F020 G001 G002 G011 G012 G013 G015 G017 G019 G020 G021 G022 G029 G030 G038 G040 G100 G112 G221 G563 H1 H142 H2 H202 H600 H608 H609 H641 H642 H643 H721 J581 K442 M111 M112 M113 M119 M121 M131 M132 M133 M135 M142 M150 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M280 M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315 M316 M320 M321 M331 M332 M333 M340 M342 M412 M424 M512 M513 M520 M521 M532 M533 M540 M541 M740 M782 Q454 R023 R043 Markush Compounds 006014303

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: 2002-093485 **Non-CPI Secondary Accession Numbers:** 2002-251965